

Sintesis Material Feroelektrik Bebas Timbal $K_{0,5}Na_{0,4}Li_{0,1}NbO_3$ dengan Metode Reaksi Padat

Nur Lailiyah Isnaini, Suasmoro

Jurusan Fisika, Fakultas MIPA, Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS)

Jl. Arief Rahman Hakim, Surabaya 60111 Indonesia

e-mail: suasm@its.ac.id

Abstrak—Material feroelektrik bebas timbal $K_{0,5}Na_{0,4}Li_{0,1}NbO_3$ disingkat KNLN disintesis dengan metode reaksi padat. Bahan dasar yang digunakan adalah K_2CO_3 , Na_2CO_3 , Li_2CO_3 dan Nb_2O_5 merk dalam bentuk serbuk. Karakterisasi material meliputi difraksi sinar-X dan analisa parameter kisi. Fasa tunggal pada KNLN telah terbentuk pada temperatur kalsinasi $750^\circ C$ selama 2 jam serta pada temperatur *sintering* $1100^\circ C$ selama 2 jam. Material KNLN ini memiliki struktur perovskite tetragonal dengan grup ruang $P4mm$ dengan parameter kisi $a=b=3,943 \text{ \AA}$ dan $c=4,011 \text{ \AA}$.

Kata Kunci—Feroelektrik, kalsinasi, perovskite, reaksi padat, *sintering*.

I. PENDAHULUAN

Sifat feroelektrik dan piezoelektrik pada material dielektrik banyak diaplikasikan dalam kemajuan teknologi. Material yang memiliki sifat feroelektrik dan piezoelektrik ini juga telah banyak menyita perhatian dalam dunia penelitian karena sifat yang dimilikinya. Material dielektrik dengan sifat feroelektrik dan piezoelektrik ini memiliki temperatur Curie yang berkisar pada daerah $250-400^\circ C$ dengan d_{33} berkisar pada daerah $400-500 \text{ pC/N}$ sehingga banyak digunakan dalam aplikasi elektronik seperti aktuator, sensor, transduser, serta perangkat permukaan gelombang akustik[1].

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan, diketahui bahwa material piezoelektrik dengan konstanta dielektrik yang unggul adalah $PbZrTiO_3$ (PZT). Tetapi, material ini memiliki dampak negatif bagi lingkungan dan kesehatan karena toksisitas dari oksida timbal selama proses preparasi. Karena sifatnya yang tidak ramah lingkungan, maka harus digantikan dengan material yang lebih ramah lingkungan. Oleh karena itu, dilakukan penelitian untuk menggantikan bahan timbal tersebut, namun tetap memiliki keunggulan yang baik dan setara dengan PZT[2]. Diketahui bahwa material berbasis niobat (K, Na) NbO_3 memiliki keunggulan dan sifat yang setara dengan PZT, namun lebih ramah lingkungan[3]. Sehingga material berbasis niobat ini mulai banyak dikembangkan oleh peneliti. Akan tetapi, masih jarang dilakukan penelitian mengenai penambahan litium (Li) pada material berbasis niobat. Sehingga pada penelitian ini dilakukan sintesis material (K, Na, Li) NbO_3 disingkat KNLN.

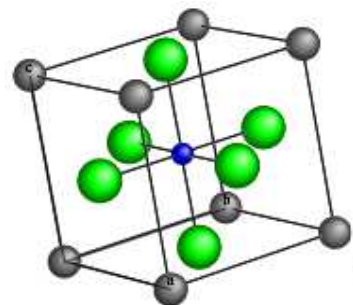
Feroelektrik merupakan jenis material dielektrik yang menunjukkan polarisasi spontan. Polarisasi spontan adalah polarisasi yang terjadi ketika tidak adanya medan listrik. Polarisasi spontan merupakan efek dari penempatan ion Ba^{2+} , Ti^{4+} , dan O^{2-} dalam sel unit. Polarisasi spontan material feroelektrik merupakan hasil

dari interaksi antara dipol-dipol magnet yang berdekatan dengan semua arah dipol yang sama. Contoh material feroelektrik yaitu kalium niobat ($KNbO_3$), kalium dihidrogen fosfat (KH_2PO_4), dan timbal zirkonat-titanat ($Pb[ZrO_3, TiO_3]$). Feroelektrik memiliki konstanta dielektrik yang tinggi jika diaplikasikan pada frekuensi medan yang relatif rendah, contohnya pada temperatur ruang, ϵ_r untuk barium titanat sebesar 5000. Oleh karena itu, kapasitor dibuat dari material dielektrik dengan sifat feroelektrik[4].

KNLN merupakan material yang baik untuk membuat bahan feroelektrik bebas timbal karena sifat feroelektriknya yang kuat. KNLN memiliki konstanta piezoelektrik $d_{33} \sim 215 \text{ pC/N}$ [5]. Analisa struktur dari material KNLN dilakukan dengan menggunakan X-Ray Diffraction (XRD).

Material berbasis niobat diketahui memiliki struktur perovskite. Perovskite merupakan nama dari kristal dengan rumus umum ABO_3 . Model struktur perovskite standar berbasis kubik dengan atom oksigen berada di setiap muka kubus, atom A berada di setiap pojok kubus dan atom B berada di pusat kubus. Namun, material berstruktur perovskite dapat memiliki basis kisi kubik, tetragonal, orthorombik dan sebagainya[6].

Sintering merupakan proses pemanasan dengan suhu tinggi pada material keramik yang bertujuan untuk menurunkan energi bebas, dan menaikkan kohesi antar partikel-partikel penyusun material sehingga terjadi pemadatan melalui eliminasi porositas serta terjadi perubahan ukuran butir[7].



Gambar 1. Unit sel dari perovskite kubik ideal ABO_3 [6].

Pada dasarnya *sintering* merupakan peristiwa penghilangan pori-pori antara partikel bahan, pada saat yang sama terjadi penyusutan komponen, dan diikuti oleh pertumbuhan *grain* serta peningkatan ikatan antar partikel yang berdekatan, sehingga menghasilkan bahan yang lebih mampat/kompak[8].

II. METODE PENELITIAN

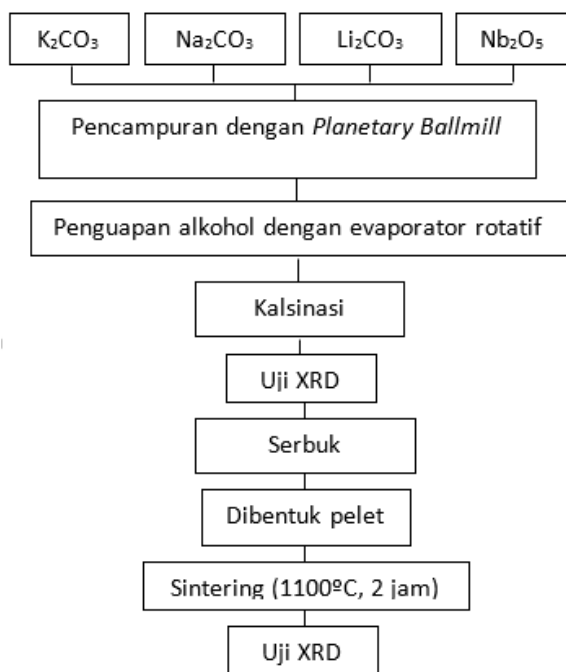
A. Sintesis Material $K_{0,5}Na_{0,4}Li_{0,1}NbO_3$

Peralatan yang digunakan pada penelitian ini adalah spatula, gelas beaker, timbangan digital *O'haus* PA214, *laboratory planetary ballmill* "Pulverisette 5" (Fritsch GmbH), evaporator rotatif "VV Micro" (Heidolph), furnace "Carbolite" tipe RHF1400 (Barnstead), *crucible*, batu tahan api, plat alumina, cetakan pelet diameter 13 mm, dan *impedance analyzer* "Solartron". Untuk bahan yang digunakan dalam penelitian ini terdiri dari serbuk K_2CO_3 , Na_2CO_3 , Li_2CO_3 , dan Nb_2O_5 (*merck*), alkohol 96%, dan aquades.

Langkah awal untuk sintesis (K, Na, Li) NbO_3 yaitu masing-masing serbuk K_2CO_3 , Na_2CO_3 , Li_2CO_3 dan Nb_2O_5 (*merck*) ditimbang sesuai dengan takaran yang sudah dihitung dengan menggunakan perhitungan stokiometri. Setelah itu dilakukan pencampur keempat serbuk dengan alkohol (96%) dalam *planetary ballmill* yang dilengkapi *zirconia balls* selama 1 jam dengan kecepatan putaran 150 rpm. Setelah dicampur, bahan ini kemudian dimasukkan ke dalam evaporator rotatif "VV Micro" (Heidolph) dengan tujuan agar alkohol yang terdapat di dalam bahan menguap sehingga didapatkan serbuk KNLN. Setelah itu dilakukan kalsinasi. Apabila sudah terbentuk fasa tunggal, lalu disinter.

B. Karakterisasi melalui uji XRD

Karakterisasi dengan XRD dilakukan setelah bahan dicampur dan dipanaskan dalam *furnace*. Uji XRD ini dilakukan untuk mengetahui apakah fasa yang diinginkan telah terbentuk. Pola yang dihasilkan berupa perbandingan antara intensitas dan sudut difraksi. Setelah itu dilakukan analisa fasa dan parameter kisi. Dari hasil karakterisasi dari uji XRD, data yang telah didapatkan kemudian dianalisa dengan menggunakan *software* untuk dicocokkan dengan *database* yang telah ada (*Match!*). Dari data XRD juga dapat diperoleh parameter kisi bahan yang dilakukan melalui penghalusan pola terhitung dan terukur menggunakan program *Rietica* yang berbasis metode *Rietveld*.

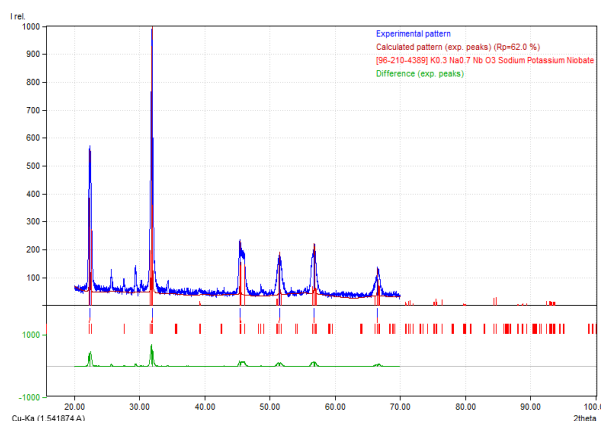


Gambar 2. Diagram alir sintesis $K_{0,5}Na_{0,4}Li_{0,1}NbO_3$.

III. HASIL DAN DISKUSI

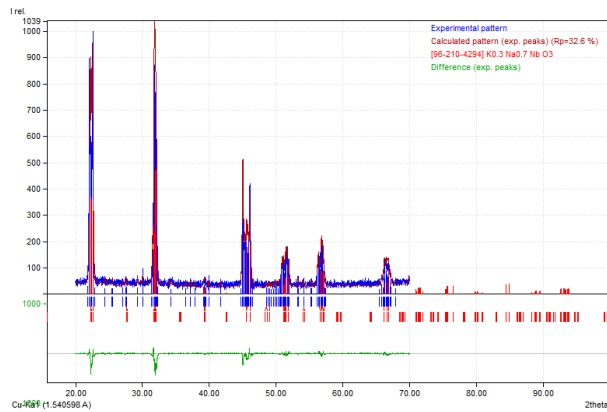
Proses sintesis KNLN ($K_{0,5}Na_{0,4}Li_{0,1}NbO_3$) dilakukan dengan metode reaksi padat. Awalnya serbuk K_2CO_3 , Na_2CO_3 , Li_2CO_3 dan Nb_2O_5 ditimbang berdasarkan perhitungan stokiometri. Setelah ke-empat serbuk tersebut ditimbang, dicampurkan di dalam *Planetary ballmill* yang dilengkapi bola zirkonia dengan medium alkohol 96% selama 1 jam dengan kecepatan 150 rpm. Hasil dari pencampuran ke-empat serbuk tersebut masih mengandung alkohol. Untuk menghilangkan alkohol, maka hasil penacampuran dari ke-empat serbuk tersebut dikeringkan dengan menggunakan evaporator rotatif. Tujuannya yaitu untuk menghilangkan alkohol dan mendapatkan serbuk KNLN dengan ukuran butir yang sama. Untuk mengetahui temperatur kalsinasi dari suatu material, dilakukan uji TGA-DTA terlebih dahulu. Pada penelitian ini, awalnya dilakukan kajian literatur untuk mengetahui temperatur kalsinasi. Dari kajian literatur, diketahui serbuk KNLN akan terbentuk pada temperatur kalsinasi 750°C selama 2 jam[9].

Kemudian serbuk KNLN dikalsinasi pada temperatur 750°C selama 2 jam. Pada temperatur tersebut diindikasikan terjadi reaksi KNLN sehingga dapat terbentuk fasa dari KNLN. Serbuk KNLN yang telah dikalsinasi, selanjutnya dilakukan pengujian XRD dengan sudut pendek 20-70°. Data yang telah didapatkan dari uji XRD KNLN yang telah dikalsinasi kemudian dianalisa dengan menggunakan *software Match!*. Gambar 3. merupakan hasil *Match!* dari serbuk KNLN yang telah dikalsinasi pada temperatur 750°C selama 2 jam.



Gambar 3. Hasil *Match!* dari keramik KNLN kalsinasi 700°C selama 2 jam.

Berdasarkan pola hasil XRD dari Gambar 3. diketahui bahwa telah terbentuk fasa kristal dari KNLN dan masih terdapat sejumlah kecil fasa $K_3Li_2Nb_5O_{15}$. Berdasarkan analisa secara kualitatif dengan menggunakan *software Match!* diketahui bahwa telah terbentuk kristal KNLN dengan nomor PDF 96-210-4389. Sebelum dibuat pelet, serbuk KNLN yang telah dikalsinasi masing-masing ditimbang dengan massa 0,8 gram. Setelah itu, serbuk KNLN yang telah ditimbang dikompaksi dengan tekanan sebesar 75 MPa sehingga terbentuk sebuah pelet. Pelet ini nantinya akan disinter kemudian diuji XRD. Berdasarkan kajian literatur diketahui bahwa temperatur sintering dari KNLN yaitu 1100°C selama 2 jam[10]. Pelet yang telah disinter tersebut kemudian diuji XRD dengan sudut pendek 20-70°.

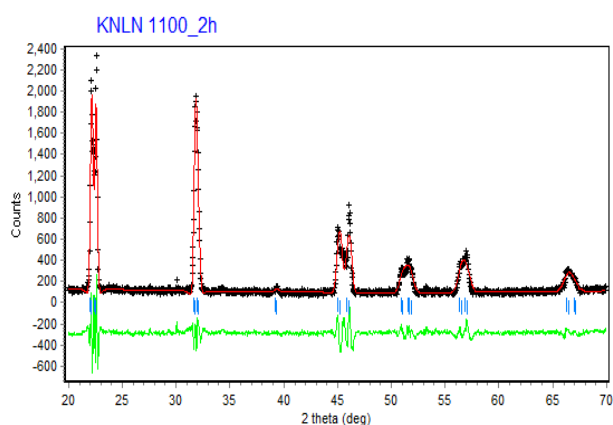


Gambar 4. Hasil *Match!* dari keramik KNLN sintering 1100°C selama 2 jam.

Berdasarkan hasil analisa secara kualitatif diketahui bahwa telah terbentuk fasa tunggal KNLN. Oleh karena itu, untuk mengetahui benar atau tidaknya data XRD yang telah diperoleh maka dilakukan analisis lebih lanjut dengan teknik penghalusan (*refinement*). Analisis Rietveld adalah metode pencocokan pola difraksi terukur dari eksperimen dan yang diperoleh dari model. Metode ini digunakan untuk menghaluskan parameter kisi dari struktur kristal material. Berdasarkan analisa ini, diketahui KNLN memiliki struktur tetragonal dengan grup ruang P4mm dengan parameter kisi $a=b=3,943 \text{ \AA}$; dan $c=4,011 \text{ \AA}$.

IV. KESIMPULAN

Keramik $K_{0,5}Na_{0,4}Li_{0,1}NbO_3$ yang telah disintesis melalui metode reaksi padat memiliki fasa tunggal dengan struktur perovskite. Material keramik ini ramah lingkungan dan tidak mengandung timbal. Temperatur kalsinasi dari keramik $K_{0,5}Na_{0,4}Li_{0,1}NbO_3$ adalah 750°C selama 2 jam. Sedangkan, temperatur sinteringnya yaitu 1100°C selama 2 jam. Material KNLN ini memiliki struktur perovskite tetragonal dengan grup ruang P4mm dengan parameter kisi $a=b=3,943 \text{ \AA}$ dan $c=4,011 \text{ \AA}$.



Gambar 5. Hasil *refinemet* pelet KNLN yang disinter pada temperatur 1100°C dengan waktu penahanan selama 2 jam.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Tuhan Yang Maha Esa, kedua orang tua, Bapak Prof. Dr. Suasmoro, DEA selaku dosen pembimbing sekaligus penyandang dana dan riset, seluruh elemen pengajar dan staf jurusan Fisika, serta teman-teman Penulis yang telah memberikan dukungan dan motivasi kepada Penulis dalam melakukan penelitian ini.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] Y. Saito, H. Takao, T. Tani, T. Nonoyama, K. Takatori, T. Homma, T. Nagaya, and M. Nakamura, "Lead-free piezoceramics," *Nature*, vol. 432, no. 7013, pp. 84–87, Nov. 2004.
- [2] W. Liu and X. Ren, "Large Piezoelectric Effect in Pb-Free Ceramics," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 103, no. 25, p. 257602, Dec. 2009.
- [3] T. Chen, H. Wang, T. Zhang, G. Wang, J. Zhou, J. Zhang, and Y. Liu, "Piezoelectric behavior of $(1-x)K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3-xBa_{0.8}Ca_{0.2}ZrO_3$ lead-free ceramics," *Ceram. Int.*, vol. 39, no. 6, pp. 6619–6622, Aug. 2013.
- [4] W. D. Callister and D. G. Rethwisch, *Fundamentals of materials science and engineering: an integrated approach*. John Wiley & Sons, 2012.
- [5] H. Du, F. Tang, F. Luo, W. Zhou, S. Qu, and Z. Pei, "Effect of poling condition on piezoelectric properties of $(K_{0.5}Na_{0.5})NbO_3-LiNbO_3$ lead-free piezoelectric ceramics," *Mater. Sci. Eng. B*, vol. 137, no. 1–3, pp. 175–179, Feb. 2007.
- [6] S. Suasmoro, S. Pratapa, D. Hartanto, D. Setyoko, and U. M. Dani, "The characterization of mixed titanate $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ phase formation from oxalate coprecipitated precursor," *J. Eur. Ceram. Soc.*, vol. 20, no. 3, pp. 309–314, 2000.
- [7] W. D. Kingery, D. P. Birnie, and Y. Chiang, "Physical Ceramics: Principles for Ceramic Science and Engineering," *Phys. Ceram. Princ. Ceram. Sci. Eng.*, 1997.
- [8] D. W. Richardson, "Modern Ceramic Engineering Properties," *Process. Use Des. N. Y.*, 1982.
- [9] C. K. Jeong, K.-I. Park, J. Ryu, G.-T. Hwang, and K. J. Lee, "Large-Area and Flexible Lead-Free Nanocomposite Generator Using Alkaline Niobate Particles and Metal Nanorod Filler," *Adv. Funct. Mater.*, vol. 24, no. 18, pp. 2620–2629, May 2014.
- [10] Zhen, Y., Li, J.-F., 2006. *Normal Sintering of (K,Na)NbO₃-Based Ceramics: Influence of Sintering Temperature on Densification, Microstructure, and Electrical Properties*. *J. Am. Ceram. Soc.* 89, 3669–3675. doi:10.1111/j.1551-2916.2006.01313.x